

## 強磁性トンネル接合の磁気抵抗効果

著者	手束 展規
号	2127
発行年	1997
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/7400">http://hdl.handle.net/10097/7400</a>

氏 名	手 東 展 規
授 与 学 位	博士（工学）
学 位 授 与 年 月 日	平成 10 年 3 月 25 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科，専攻の名所	東北大学大学院工学研究科（博士課程）応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	強磁性トンネル接合の磁気抵抗効果
指 導 教 官	東北大学教授 宮崎 照宣
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 宮崎 照宣 東北大学教授 松原 史卓 東北大学教授 高中 健二 東北大学教授 小池 洋二

## 論文内容要旨

### 第 1 章 序論

強磁性トンネル接合（強磁性体/絶縁体/強磁性体）では，3d 電子がそのトンネル電流の一部を担っている．強磁性体の 3d 電子は分極しており，フェルミ面での上向きスピンと下向きスピンの状態密度が異なる．したがって，強磁性トンネル接合では，スピンの向きを保存したまま電子がトンネルするならば，両電極の磁化の状態によりトンネル電流が変化する．この現象は磁気トンネリング効果と呼ばれており，印加磁界により抵抗値が変化するので磁気抵抗効果の一種である．両磁性体の磁化の向きが平行および反平行の際の接合の抵抗をそれぞれ  $R_s$ ， $R_a$  とすると， $(R_a - R_s)/R_s$  で定義した磁気抵抗比は，簡単なバンドモデルでは， $2P_1P_3/(1 - P_1P_3)$  と表せる．ここで， $P_1$ ， $P_3$  はそれぞれ 1 層目と 3 層目の強磁性体の分極率である．

磁気抵抗比に関する実験報告はこれまで数件あるが，理論的に予測される磁気抵抗比に比べると実験で得られる値は一桁小さく，特に室温では高々 2 % と小さかった．また，接合に用いた強磁性体および絶縁体と磁気抵抗比の関係について系統的に調べた実験報告は無く，磁気抵抗比や  $R_s$  の温度変化，印加電圧依存性が明らかでない．したがって，分極率と磁気抵抗比の関係，障壁高さおよび幅と磁気抵抗比の関係，更には，磁気トンネリング効果の印加電圧，温度依存性等を明らかにし，その発現機構を解明することを本研究の目的とし，実験を行った．

### 第 2 章 実験方法

電極となる強磁性体は，EB 蒸着，RF スパッタを用いて，膜厚 200～1000 Å に作製した．絶縁体は Al 金属薄膜（10～100 Å）を RF スパッタ法により成膜し，引き続き恒温槽中で酸化し，絶縁体 Al-oxide を作製した．十字型の接合を作製しており，接合面積は 0.01～1 mm<sup>2</sup> である．磁気抵抗比， $I(G)$ - $V$  特性は直流四端子法で，磁気特性は振動試料型磁力計および SQUID で，Al-oxide の構造解析はフーリエ変換赤外分光法（FT-IR）で，表面荒さは原子間力顕微鏡（AFM）でそれぞれ測定した．

### 第 3 章 磁気抵抗比の分極率依存性

接合の強磁性体の磁気抵抗比への影響を明らかにするため，Fe/Al-oxide/Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub> 接合および (80NiFe, Fe, FeCo)/Al-oxide/Co 接合を作製し，磁気抵抗曲線の測定を行った．

4.2 K, 印加電圧約 0.5 mV における Fe/Al-oxide/Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>接合の磁気抵抗比は,  $x = 0.8$  で最大値を取ることが分かった. また, 磁気抵抗比の  $x$  依存性は, 分極率 (磁化) の  $x$  依存性とほぼ同じであることが分かった.

Fig. 1 に磁気抵抗比の分極率から期待される期待値と実験値の関係を示す. 本研究で調べた Fe/Al-oxide/Ni<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>接合, (80NiFe, Fe, FeCo)/Al-oxide/Co 接合 (●) ならびに他のグループの報告値 (○) をまとめて示してある. この結果より, 4.2 K では, 電極に分極率の大きな強磁性体を用いた接合ほど得られる磁気抵抗比も大きくなることが明らかとなった.

以上の結果は, 第 1 章で述べた理論的説明を支持している.

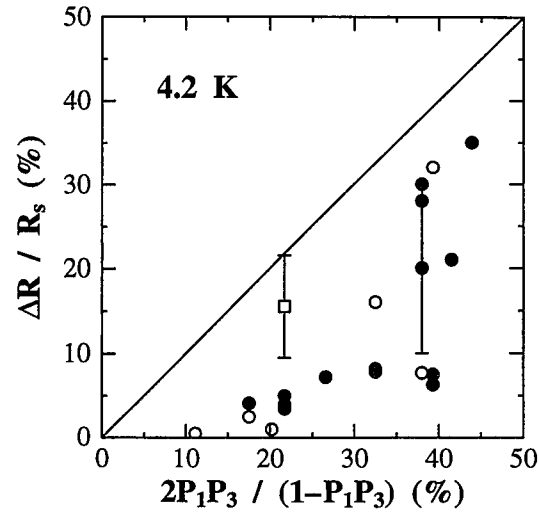


Fig. 1 磁気抵抗比の分極率依存性  
●: 本研究結果, ○: 報告値

#### 第 4 章 磁気抵抗比の障壁高さ依存性

磁気トンネリング効果における絶縁体の役割を明らかにするために, Al の酸化膜の構造解析, 磁気抵抗比の障壁高さ依存性を調べた.

(a)Fe/Al-oxide/Fe, (b)Al-(Al-oxide)/Fe, および (c)Al-(Al-oxide)/Al 接合を作製し, その I-V 特性から障壁高さを求めた. Al を同一条件で酸化しても障壁高さ ( $\Phi$ ) は,  $\Phi_{(a)} \leq \Phi_{(b)} \leq \Phi_{(c)}$  の関係にあった. また, 同構成の接合の場合, 酸化時間が長いほど, 酸化温度が高いほど障壁高さは高くなった.

glass/Fe/Al 膜を作製し, 酸化温度 30, 60 °C, 酸化時間 0~100 時間の条件で Al の表面を酸化し, FT-IR を用いて Al の酸化状態を調べた. その結果, 酸化温度が高いほど, また酸化時間が長いほど Al-O の分子振動のピーク強度が増加し, ピーク位置が低エネルギー側にシフトした. Al-O の一次元の分子振動のモデルから分散関係を求め, 酸化の進行に伴い Al-O の結合力が変化し, さらに障壁高さに影響することを示した.

Fig. 2 に磁気抵抗比の障壁高さ依存性を示す. ●印は本研究結果を, △印は他のグループの報告値を示している. 実線は, 1, 3 層目の量子化軸の方向が異なるとし, 界面での波動関数の連続性より, トンネルコンダクタンスを導いた Slonczewski のモデルで, 磁気抵抗比の障壁高さ依存性を計算した結果である. 実験結果と計算結果は, 傾向が一致していることが分かる. この結果, 絶縁体を介した強磁性体の分極率が, 障壁高さにより変化し, 磁気抵抗比が障壁高さに依存することが明らかとなった.

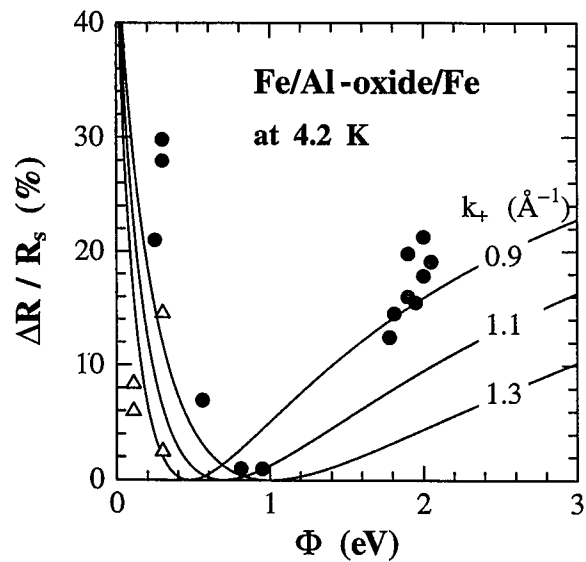


Fig. 2 磁気抵抗比の障壁高さ依存性  
●: 本研究結果, △: 報告値

## 第5章 磁気抵抗比の Al 膜厚依存性

磁気抵抗比の絶縁障壁幅依存性を明らかにするために、Al 膜厚、接合面積の異なる 80NiFe/Al-oxide/Co 接合を作製し、室温で抵抗値および磁気抵抗比の Al 膜厚依存性を調べた。

Al 膜厚が一定の場合、接合面積の増加に伴い、抵抗値は減少した。しかし、抵抗値の面積依存性から接合面積全体でなく、エッジの部分をトンネル電流が主に流れていることが分かった。また、磁気抵抗比の接合面積依存性より、接合面積が  $0.5 \text{ mm}^2$  以上になると面内抵抗の影響により、磁気抵抗比が若干増大した。

接合面積が  $0.01 \text{ mm}^2$  の場合、Al 膜厚の増加に伴い、抵抗値は増加し、磁気抵抗比はある膜厚で最大値を取り、その後膜厚の増加に伴い減少した。また、磁気抵抗比が最大値を示す膜厚は、1 層目の膜厚により変化することを示した。

絶縁体として膜厚が  $12 \text{ \AA}$  の Al を酸化させた接合と、 $12 \text{ \AA}$  の Al を酸化し、更に  $12 \text{ \AA}$  の Al を酸化させた接合、および  $24 \text{ \AA}$  の Al を酸化させた接合を比べた結果、磁気抵抗比は、それぞれ約 14, 2.5, 2 % であった。この結果より、ある厚さ以上の Al 膜厚により磁気抵抗比が減少するのは、単に酸化されずに残った Al が存在するためだけでは、説明できないことを示した。

## 第6章 磁気抵抗比の温度・印加電圧依存性

磁気抵抗比の温度ならびに印加電圧依存性を明らかにし、その原因を解明するため、Fe/Al-oxide/Fe 接合ならびに 80NiFe/Al-oxide/Co 接合を作製し、その抵抗値（コンダクタンス）ならびに磁気抵抗比の温度依存性、印加電圧依存性を調べた。

4.2 K における G-V カーブのゼロバイアス付近での異常より、絶縁体中もしくは強磁性体/絶縁体界面近傍に磁性不純物が存在することが分かった。Fe/Al-oxide/Fe 接合において、zero bias anomaly の印加磁界依存性を調べ、ノーマルトンネル ( $t$ ) の確率とスピンフリップを伴うトンネル ( $T_J$ ) の確率の比 ( $T_J^2/t^2$ ) を求め、 $T_J^2/t^2 = 0.1$  を得た。

Fig. 3 に種々の大きさの電圧で測定した磁気抵抗比の温度依存性を示す。温度の増加に伴い、磁気抵抗比は減少する。印加電圧が小さいときほど、磁気抵抗比の温度変化が激しく、また、温度が上昇すると、印加電圧依存性は小さくなることが分かる。コンダクタンスの比 ( $T_J^2/t^2 = 0.1$ ) を用いて、界面に磁性不純物が存在するモデルで、磁気抵抗比を計算した結果を実線で示す。100 K 以下では、本実験結果と計算結果は一致しており、この界面近傍の不純物が磁気抵抗比に影響をおよぼしていることが分かる。また、Fe/Al-oxide/Fe 接合と 80NiFe/Al-oxide/Co 接合の磁気抵抗比の温度依存性を比較することで、不純物のスピン量子数の違いにより、その依存性も変わることを示した。抵抗値、磁気抵抗比の温度ならびに印加電圧依存性を比較した。その結果、抵抗値、磁気抵抗比とも印加電圧依存性は、温度依存性と同じ傾向であることが分かった。つまり、印加電圧依存性と温度依存性の起源は同じであることを示した。

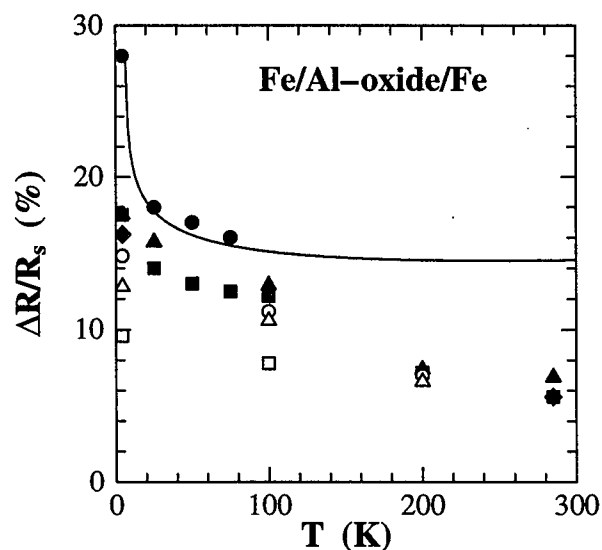


Fig. 3 磁気抵抗比の温度依存性

● : 0.05 mV, ▲ : 0.5, ■ : 1, ◆ : 5,  
○ : 10, △ : 20, □ : 50, — : cal.

以上より、界面近傍の磁性不純物が磁気抵抗比の温度、印加電圧依存性の一つの原因であることが明らかとなった。

## 第7章 強磁性トンネル接合における磁気抵抗比の焼鈍効果

80NiFe/Al-oxide/Co 接合を作製し、150 °C、250 °C、350 °Cで焼鈍を行い、その磁気抵抗比の焼鈍温度依存性、ならびに AFM による Al-oxide 表面の観察、I-V 特性、G-V 特性の測定を行った。

絶縁体として Al を 60 °C で酸化した接合を焼鈍した場合、抵抗値は焼鈍により、増加する接合もあれば、減少する接合もあった。磁気抵抗比も、焼鈍により増加、減少と接合ごとに変化した。抵抗値がわずかに増加する接合は、磁気抵抗比も増加したのに対し、大きく増加する接合、減少する接合は磁気抵抗比は逆に小さくなった。Al-oxide 表面を AFM で調べた結果、焼鈍することにより、ラフネスは大きな変化を示さなかった。しかし、焼鈍温度が高くなるに従い、隆起物が現れてくることが分かった。各接合の抵抗値ならびに磁気抵抗比の温度変化を測定した。350 °C で焼鈍した接合は、抵抗値の温度変化が金属的であったり、磁気抵抗比の温度変化から面内抵抗の影響が大きくなっていることが分かった。I-V 特性を解析した結果、250 °C まで焼鈍温度を上げるにしたがい、障壁高さは高くなった。G-V 特性の結果より、250 °C まで焼鈍温度を上げるにしたがい、磁性不純物による zero bias anomaly は小さくなった。以上の結果、焼鈍により障壁高さが高くなり、かつ磁性不純物による anomaly のない接合では、磁気抵抗比は増加することが明らかとなった。磁性不純物の影響がなくても障壁高さが低くなる、もしくは絶縁障壁幅が厚くなる接合は磁気抵抗比が減少した。また、隆起物が絶縁体に現れた接合では、導通もしくは面内抵抗の影響がおおきくなった。

Al の酸化温度が室温の場合、抵抗値は 150、250 °C と焼鈍温度をあげるにつれて増加し、350 °C の焼鈍により抵抗は減少した。磁気抵抗比は、焼鈍温度 150 °C ではほとんど変化せず、250 °C で焼鈍することにより、増加した。350 °C で熱処理すると、磁気抵抗比は小さくなった。抵抗値が増加する接合は磁気抵抗比も増加し、減少する接合は磁気抵抗比も減少した。

## 第8章 総括

本研究の成果を要約すると、まず、強磁性トンネル接合で、室温でも 18 % 以上の磁気抵抗比を示すことを初めて報告し、これが強磁性トンネル接合の実用的研究の端緒となったことがあげられる。一方物理的には、強磁性トンネル接合の磁気抵抗比の分極率依存性、絶縁障壁高さおよび幅依存性ならびに、強磁性体/絶縁体界面の磁性不純物を考慮し、磁気抵抗比の温度ならびに印加電圧依存性を明らかにしたことである。

## 審査結果の要旨

トンネル磁気抵抗効果に関する研究は、1975年にはじめて報告され、その後いくつかの報告があるが、大きな磁気抵抗比を示す良質の強磁性トンネル接合（強磁性体/絶縁体/強磁性体）を作製することができなかったため、その発現機構はほとんど解明されていない。本論文は、良質の強磁性トンネル接合の作製方法を確立し、その磁気抵抗比の発現機構の解明に関する研究成果をまとめたもので、全文8章よりなる。

第1章は序論である。第2章は、強磁性トンネル接合の作製方法および磁気抵抗の測定方法を述べている。

第3章では、磁気抵抗比（TMR比）の分極率依存性について述べている。4.2 KでTMR比を比較すると、分極率の大きな強磁性体を電極に用いたほうが、得られるTMR比も大きくなることを実験的に見いだした。この結果は、強磁性トンネル接合を作製する際の電極の選定を行う際に重要な知見となる。

第4章では、TMR比の絶縁体の障壁高さ依存性について述べている。10~20 ÅのAlの酸化条件（時間・温度）を変えた絶縁体を作製し、フーリエ変換赤外分光法を用いてその構造解析を行い、また、電流-電圧特性より障壁高さを求め、絶縁体の作製条件を詳細に検討した結果をまとめている。更に、4.2 KのTMR比の障壁高さ依存性は、障壁高さにより強磁性体の分極率が見かけ上変化するモデルで説明できることを示している。

第5章では、TMR比のAl膜厚（10~70 Å）依存性について述べている。Al膜厚が厚くなっても抵抗値がAl膜厚に比例して増加することからAl全体が酸化されていると結論している。Al膜厚（絶縁体幅）が厚くなると、TMR比は減少することを明らかにし、障壁幅によっても分極率が見かけ上変化することを示している。

第6章は、TMR比の温度ならびに印加電圧依存性について述べている。コンダクタンス(G)-電圧(V)曲線から、磁性不純物によるzero bias anomalyについて調べ、ノーマルトンネル確率とスピNFLリップを伴うトンネル確率の比を実験データを解析することにより求めている。また、この比とスピNFLリップを伴うコンダクタンスの理論計算の結果を用いて、TMR比の温度依存性の実験結果を定量的に説明できることを示している。次いで、TMR比の温度依存性と印加電圧依存性を比較し、両依存性とも絶縁層中の磁性不純物によるスピNFLリップが原因であることを示している。更に、電極金属の種類を変えた接合のTMR比の温度ならびに印加電圧依存性を比較し、電極に依存する磁性不純物の違いにより、TMR比の温度ならびに印加電圧依存性が変化することを示している。

第7章は、強磁性トンネル接合における焼鈍効果について述べている。焼鈍することにより接合の抵抗値、およびTMR比が変化することを示している。原子間力顕微鏡を用いた絶縁体の表面観察の結果と、G-V曲線より、焼鈍温度により接合界面が変化することを示し、界面状態とTMR比の関係を明らかにしている。

第8章は総括である。

以上要するに本論文は、トンネル磁気抵抗効果における強磁性体（電極）、絶縁体の役割および接合界面のTMR比への影響を明らかにし、その温度ならびに印加電圧依存性の機構を解明したものである。これらの成果は、磁性（スピン）と伝導の物性物理学分野のみならず磁気工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。